

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 05-159916

(43)Date of publication of application : 25.06.1993

(51)Int.Cl.

H01F 1/113
H01F 1/11

(21)Application number : 03-320215

(71)Applicant : IDEMITSU KOSAN CO LTD

(22)Date of filing : 04.12.1991

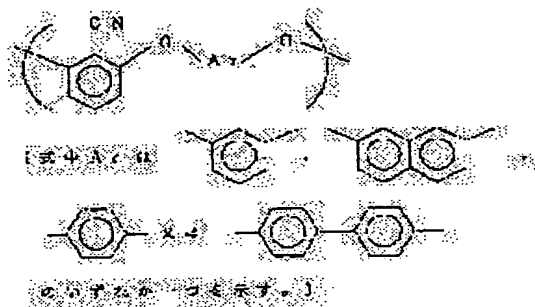
(72)Inventor : TOMIOKA TATSUYA
KAWAHIGASHI HIROYUKI

(54) MAGNETIC POWDER COMPOSITION COVERED WITH RESIN

(57)Abstract:

PURPOSE: To get a composition excellent in heat resistance, moisture resistance, chemical resistance, and mechanical strength without causing mold scuffing by mixing a solid lubricant to magnetic powder covered with resin where thermo plastic resin having crystal property and heat resistance covers or adheres to magnetic powder.

CONSTITUTION: 0.1-6wt.% thermoplastic resin, which has crystal property and heat resistance, covers or adheres to 91.0-99.89wt.% magnetic powder such as ferrite powder, etc. The thermoplastic resin used here has a repeat unit shown by the formula, and besides the extreme viscosity at 60° C with p- chlorophenol as a solvent is 0.2dl/g or more. Next, 0.01-3.0wt.% solid lubricant such as Teflon, etc., is mixed in this magnetic powder covered with resin. Hereby, a composition excellent in heat resistance, moisture resistance, chemical resistance, and mechanical strength can be obtained without causing mold scuffing.



LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

(19)日本国特許庁 (J P)

(12) 公 開 特 許 公 報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開平5-159916

(43)公開日 平成 5 年(1993) 6 月25日

| | | | | |
|--------------------------|------|---------|-----|--------|
| (51)Int.Cl. ⁵ | 識別記号 | 庁内整理番号 | F I | 技術表示箇所 |
| H 0 1 F 1/113 | | 7371-5E | | |
| 1/11 | A | 7371-5E | | |

審査請求 未請求 請求項の数 3 (全 13 頁)

(21)出願番号 特願平3-320215

(22)出願日 平成 3 年(1991)12月 4 日

(71)出願人 000183646

出光興産株式会社

東京都千代田区丸の内 3 丁目 1 番 1 号

(72)発明者 富岡 達矢

千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地 出光興産株式会社内

(72)発明者 川東 宏至

東京都千代田区丸の内三丁目 1 番 1 号 出光興産株式会社内

(74)代理人 弁理士 大谷 保

(54)【発明の名称】 樹脂被覆磁石粉末組成物

(57)【要約】

【目的】 型かじりがなく、優れた耐熱性ととも、優れた耐湿性、耐薬品性及び機械的強度を合わせ有する樹脂被覆磁石粉末組成物の開発。

【構成】 磁石粉末に結晶性かつ耐熱性を有する熱可塑性樹脂が被覆または付着している樹脂被覆磁石粉末、および固体潤滑剤からなる樹脂被覆磁石粉末組成物である。

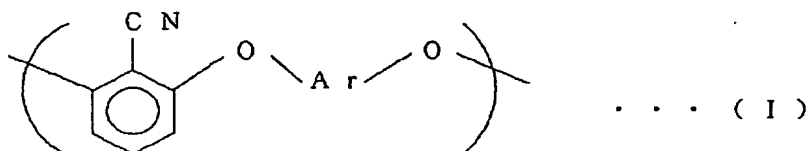
【特許請求の範囲】

【請求項1】 磁石粉末91.0～99.89重量%に0.1～6重量%の結晶性かつ耐熱性を有する熱可塑性樹脂が被覆または付着している樹脂被覆磁石粉末、および固体潤滑剤0.01～3.0重量%からなる樹脂被覆磁石粉末組*

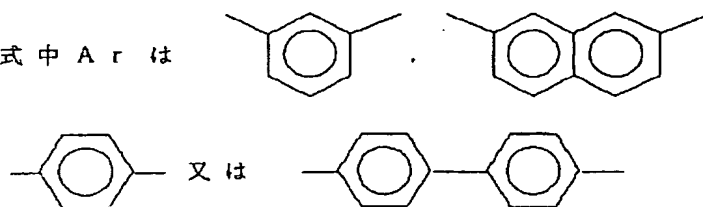
*成物。

【請求項2】 結晶性かつ耐熱性を有する熱可塑性樹脂が、一般式(I)

【化1】



【式中Arは



のいずれか一つを示す。】

で表される繰り返し単位を有し、かつp-クロロフェノールを溶媒とする60℃における極限粘度 $[\eta]$ が0.2

d l/g以上のものである請求項1記載の樹脂被覆磁石粉末組成物。

【請求項3】 固体潤滑剤が、テフロン、二硫化モリブデン、黒鉛、パーフルオロカルボン酸塩、有機カルボン酸エステル、窒化硼素および二硫化タングステンよりなる群から選ばれた少なくとも一種である請求項1記載の樹脂被覆磁石粉末組成物。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【産業上の利用分野】本発明は、樹脂被覆磁石粉末組成物に関し、詳しくは、成型時に型かじりがなく、また耐熱性、耐湿性などに優れた樹脂被覆磁石粉末組成物に関する。

【0002】

【従来の技術及び発明が解決しようとする課題】従来の樹脂結合型永久磁石は、例えば特開昭57-40003号公報、同58-173804号公報、同58-16002号公報などに示されているように、主に射出成型あるいは圧縮成型法により作られ、樹脂バインダーとしては、射出成型法ではポリアミド、エチレン-酢酸ビニル共重合体など、圧縮成型法ではエポキシ樹脂が使用されている。しかしながら、ポリアミドやエポキシ樹脂等をバインダーに用いた樹脂結合型永久磁石は、耐湿性に劣るため、錆の発生及び経時寸法変化による特性の低下が問題となっており、限界使用温度も120～150℃と低いものである。さらに、これらのポリアミドやエポキシ樹脂等をバインダーとした樹脂結合型永久磁石の欠点を改良するために、バインダーにポリフェニレンサルファイド(PPS)が用いられている(特開昭61-279106公報、同60-113403公報など)。しか

20

し、PPSをバインダーとした樹脂結合型永久磁石は、耐湿性及び耐薬品性には優れているものの、耐熱性及び機械的強度に関しては充分とは言い難い。合成樹脂をマトリックスとして磁性粉末を結合したものに、減摩剤を添加したもの(特開昭60-133707号公報)は、合成樹脂としてポリアミド、ポリオレフィンなどを、用いているため耐熱性及び耐湿性に劣っている。

【0003】また、結晶性かつ耐熱性の重合体を被覆または付着した樹脂被覆磁石粉末は、冷間圧縮成型の際に、成型体の側面と金型との摩擦により樹脂および磁石粉末が剥離し、剥離粉が金型のダイスおよびパンチの隙間に入り込み、型かじり現象を引き起こす。この型かじり現象は、金型を摩耗させ成型体の外観を損なう原因となり、過度の型かじりは、パンチとダイスの動作を停止させるため、成型不可能となる。本発明者らは、かかる従来技術の欠点を解消し、型かじりを生じさせることなく、優れた耐熱性ととともに、優れた耐湿性、耐薬品性及び機械的強度を合わせ有する樹脂被覆磁石粉末組成物を開発すべく、鋭意研究を重ねた。

【0004】

【課題を解決するための手段】その結果、磁石粉末に結晶性かつ耐熱性を有する熱可塑性樹脂が被覆または付着している樹脂被覆磁石粉末に、固体潤滑剤を配合した組成物が、上記課題を解決する素材となることを見出した。本発明は、かかる知見に基いて完成したものである。

40

【0005】すなわち、本発明は、磁石粉末91.0～99.89重量%に0.1～6重量%の結晶性かつ耐熱性を有する熱可塑性樹脂が被覆または付着している樹脂被覆磁石粉末、および固体潤滑剤0.01～3.0重量%からなる樹脂被覆磁石粉末組成物を提供するものである。

50

【0006】本発明の組成物に用いられる磁石粉末とし

ては、特に制限はなく各種のものを用途に応じて適宜選定すればよい。その具体例をあげれば、フェライト粉末、例えば $\text{BaO} \cdot 6\text{Fe}_2\text{O}_3$, $\text{MnO} \cdot \text{ZnO} \cdot \text{Fe}_2\text{O}_3$, $\gamma\text{-Fe}_2\text{O}_3 \cdot \text{PbO} \cdot 6\text{Fe}_2\text{O}_3$, $\text{SrO} \cdot 6\text{Fe}_2\text{O}_3$ など、アルニコ粉末、例えば JIS 規格の MCA160, MCA230, MCB500, MCB580, MCB400H など、希土類コバルト粉末、例えば SmCo_5 , PrCo_5 , NdCo_5 , MMCo_5 (ここで、MM はミッシュメタルである), SmPrCo_5 , SmPrNdCo_5 , SmMMCo_5 , R_2Co_{17} (式中 R は、原子番号 58 ~ 71 の一連の希土類元素を示す。), $\text{Sm}_2\text{Co}_{17}$, $\text{Pr}_2\text{Co}_{17}$, $\text{Sm}_2(\text{Co}, \text{Fe}, \text{Cu})_{17}$, $\text{Sm}_2(\text{Co}, \text{Fe}, \text{Cu}, \text{M})_{17}$ (式中 M は Ti, Zr 又は Hf である) が挙げられる。さらに、希土類・鉄・ホウ素粉末 ($\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$, $\text{Nd}_2\text{Fe}_{12}\text{Co}_2\text{B}$, $\text{Pr}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ など) が挙げられる。その他、 Fe-Cr-Co 磁石粉末, Mn-Al-C 磁石粉末, Pt-Co 磁石粉末, Pt-Fe 磁石粉末, キュニフェ磁石粉末が挙げられる。

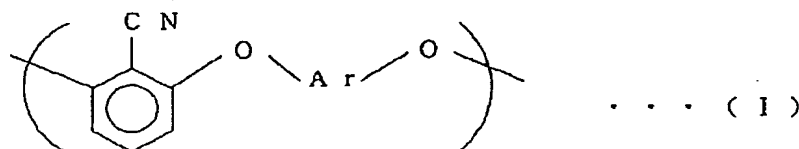
【0007】本発明においては、上記磁石粉末は、そのまま上述の熱可塑性樹脂と混合してもよいが、磁石粉末の酸化防止とバインダー（熱可塑性樹脂）中への分散性の向上のため、該磁石粉末に対して 5 重量%以下、特に 0.5 ~ 2.0 重量%程度のカップリング剤で表面処理して用いることが好ましい。ここで、使用しうるカップリング剤としては、各種のものがあるが、チタネート系及びシラン系のものが代表的である。チタネート系カップリング剤としては、例えばイソプロピルトリオクタノイルチタネート、イソプロピルトリオクタノイルチタネート、イソプロピルトリス（ジオクチルパイロホスフェート）チタネート、イソプロピルジメタクリルイソステアロイルチタネート、イソプロピルトリ（N-アミノエチル-アミノエチル）チタネート、イソプロピルトリデシルベンゼンスルホニルチタネート、イソプロピルイソステアロイルジアクリルチタネート、イソプロピルト*

*リ（ジオクチルホスフェート）チタネート、イソプロピルトリクミルフェニルチタネート、テトライソプロピルビス（ジオクチルホスファイト）チタネート、テトラオクチルビス（ジトリデシルホスファイト）チタネート、テトラ（2, 2-ジアリルオキシメチル-1-ブチル）ビス（ジトリデシル）ホスファイトチタネート、ビス（ジオクチルパイロホスフェート）オキシアセテートチタネート、ビス（ジオクチルパイロホスフェート）エチレンチタネートなどがあげられ、これらを単独であるいは混合物として使用することができる。また、シラン系カップリング剤としては、例えば γ-メルカプト-プロピルトリメトキシシラン、2-スチルル-エチルトリメトキシシラン、N-β-（アミノエチル）γ-アミノ-プロピルトリメトキシシラン、β-（3, 4-エポキシシクロヘキシル）エチルトリメトキシシラン、γ-アミノプロピルトリメトキシシラン、γ-グリシドキシ-プロピルトリメトキシシラン、フェニルトリメトキシシラン、メチルジメトキシシランなどがあげられ、これらを単独であるいは混合物として使用することができる。また、チタン系カップリング剤とシラン系カップリング剤を併用することもできる。カップリング剤による表面処理は、磁石粉末をカップリング剤の 5 ~ 20 容量%溶液（アルコールなどを溶媒とする）で湿潤させた後、室温以上の温度、好ましくは 120 ~ 150℃ で乾燥することによって行えばよい。このようなカップリング剤による表面処理により、磁石粉末に撥水性や潤滑性が付与され、得られる磁石組成物の機械的強度等を向上させる。

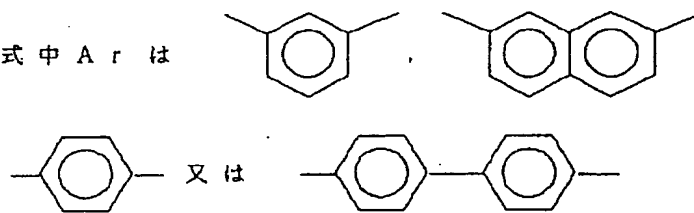
【0008】本発明で用いられる結晶性かつ耐熱性を有する熱可塑性樹脂としては種々あるが、例えばポリエーテルエーテルケトン（PEEK）、ポリフェニレンスルフィド（PPS）、ポリアリールシアノエーテルなどがあり、好ましくは一般式

【0009】

【化2】



〔式中 Ar は



のいずれか一つを示す。〕

【0010】で表わされる繰返し単位を有し、かつ p-クロロフェノールを溶媒とする 60℃ における極限粘度

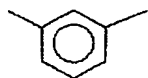
〔η〕が 0.2 dl/g 以上である熱可塑性樹脂が挙げられる。本発明の樹脂結合型磁石組成物では、上記のよう

5

に一般式〔I〕で表わされる繰返し単位を有する熱可塑性樹脂、即ちポリシアノアリアルエーテルが好適に用いられる。ここで、Ar が

【0011】

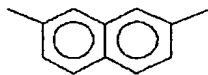
【化3】



【0012】である一般式〔I〕で表わされる繰返し単位を有する熱可塑性樹脂（以下、PEN-Rと略記する）は、特開昭62-223226号公報に記載されているものである。また、Ar が

【0013】

【化4】



【0014】である繰返し単位を有する熱可塑性樹脂（以下、PEN-Nと略記する）は、特開昭61-162523号公報に記載されているものである。さらに、Ar が

【0015】

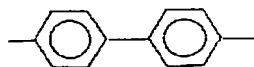
【化5】



【0016】である繰返し単位を有する熱可塑性樹脂（以下、PEN-Hと略記する）は、特開昭61-57619号公報に記載されており、Ar が

【0017】

【化6】



【0018】である繰返し単位を有する熱可塑性樹脂（以下、PEN-Bと略記する）は、特開昭60-147439号公報に記載されているものである。本発明に用いる熱可塑性樹脂のうちの好ましいものは、前記の繰返し単位を有し、さらにp-クロロフェノールを溶媒とする60℃における極限粘度 $[\eta]$ が0.2dl/g以上、好ましくは0.4~2.0dl/gの範囲のものである。この極限粘度 $[\eta]$ が0.2dl/g未満のものは、得られる成型品の強度が著しく小さく、また、耐熱性に劣るものとなる。一方、極限粘度 $[\eta]$ が高すぎると、バインダー樹脂の重合後の精製が困難な上に成型加工性に劣る場合がある。

【0019】上記熱可塑性樹脂の分子量は、大き過ぎると後述の成型の際の印加圧が大きくなり型戻しが起きたり、解砕の際に解砕されにくく、逆に分子量が小さ過ぎると樹脂被膜が困難となったり、成型体が充分な強度を有さない問題がある。従って、熱可塑性樹脂としてPE

6

EKを用いた場合のp-クロロフェノールを溶媒とする60℃における極限粘度 $[\eta]$ は0.3dl/g以上、好ましくは0.3~0.85dl/gである。PPSを用いた場合の α -クロロナフタレンを溶媒とする206℃における極限粘度 $[\eta]$ は0.1dl/g以上、好ましくは0.1~0.3dl/gである。ポリアリアルシアノエーテルを用いた場合のp-クロロフェノールを溶媒とする60℃における極限粘度 $[\eta]$ は0.2dl/g以上、好ましくは0.3~0.9dl/gである。

【0020】これらの熱可塑性樹脂の被覆あるいは付着量は、全組成物を基準にして、磁石粉末91.0~99.89重量%に対して0.1~6重量%、好ましくは1~4重量%である。ここで、0.1重量%未満の場合は、成型後の成型体の強度が保持できず、6重量%を超えると成型体の磁気特性が低下する。

【0021】一方、本発明の組成物に用いられる固体潤滑剤としては、特に制限はなく各種のものを用途に応じて適宜選択すればよい。具体例としては、テフロン、二硫化モリブデン、黒鉛、パーフルオロカルボン酸塩、有機カルボン酸エステル（例えば、ポリオキシアルキレン（ $C_2 \sim C_4$ ）ヒマシ油（又は水添ヒマシ油）エーテルのピログルタミン酸、脂肪酸（ $C_8 \sim C_{22}$ ）又はN-アルキロイルまたはアルケノイル（ $C_7 \sim C_{21}$ ）アミノ酸（グリシン、グルタミン酸、サルコシン、メチルアラニン、バリン、 β -アラニン、フェニルアラニン）エステル（少なくとも1個のピログルタミン酸エステル部分を含む）やヒマシ油エチレンオキサイド付加物の脂肪酸（ $C_2 \sim C_{24}$ ）エステル）、窒化硼素および二硫化タングステンなどがあり、その形状は特に制限はないが、粉末状で用いることが好ましい。また、これらの固体潤滑剤は、単独でも複数組み合わせ用いてもよい。この固体潤滑剤の添加量は、樹脂被覆磁石粉末組成物に対して0.01~3.0重量%、好ましくは0.01~1.0重量%である。ここで、0.01重量%未満の場合は型かじり防止効果が小さくなり、逆に3.0重量%を超えると成型体の強度が不十分となる。なお、樹脂被覆磁石粉末に対して、固体潤滑剤を添加するにあたっては、単に該樹脂被覆磁石粉末に固体潤滑剤を加えてもよいが、特開平2-22802号公報や同2-281713号公報に記載されている方法、即ち磁石粉末に樹脂を被覆する際に、樹脂と固体潤滑剤を同時に添加して、添加剤含有樹脂被覆磁石粉末を製造する方法によってもよい。

【0022】本発明の樹脂被覆磁石粉末組成物は、上記のような樹脂被覆磁石粉末と固体潤滑剤とからなるものであり、更に必要に応じて各種の添加剤を配合することもできる。本発明の樹脂被覆磁石粉末組成物を用いて、磁石を製造（成型）するには圧縮成型法が好ましく、この圧縮成型は、15kOe以上の磁界を印加する（異方性樹脂磁石を製造する場合）場合も、また磁界を印加しない場合も1t/cm²以上の圧力下で行うことが効果

的である。また、その後に行う熱処理は、熱可塑性樹脂の軟化（流動）温度又は融点以上の温度で、数分間曝露するだけでよい。さらに着磁は、20kOe以上の磁界を印加するなどの通常の方法で行うことができる。

【0023】

【実施例】次に、本発明を実施例によりさらに詳しく説明する。なお、下記の実施例に使用する原料及び装置は下記のとおりである。

(1) 磁石粉末

フェライト粉末

ストロンチウムフェライト； $\text{SrO} \cdot 6\text{Fe}_2\text{O}_3$ 日本弁柄工業（株）製のNP-20（シランカップリング表面処理製品）

希土類コバルト粉末

サマリウムコバルト2-17系； $\text{Sm}_2\text{Co}_{17}$

信越化学工業（株）製のR-30（32メッシュアンダー）：ボルテックス粉碎機に磁石粉末3kg及びイソプロパノール5リットルを投入し、 N_2 ガスで充分置換した後、7分間粉碎し、分級して平均粒径 $3.7\mu\text{m}$ の粉末を得た。得られた磁石粉末3kgをスーパーミキサーに投入し、 N_2 ガス雰囲気下で 100°C に昇温し、攪拌下にシランカップリング剤〔日本ユニカー（株）製A-1120（N-β-アミノエチルγ-アミノγ-プロピレートトリメトキシシラン）〕のイソプロパノール10%溶液300gを5分間で滴下した。その後、10分間攪拌を続け、続いて窒素ガスを吹き込みながら脱溶媒を行った。その後、オープン中に 100°C で1時間保持した。

ネオジム系磁石粉末

（希土類-鉄-ホウ素粉末）： $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$

ゼネラルモーターズカンパニー製のMQ-B粉末

ボールミル中に磁石粉末3kgを投入し、攪拌下にチタネートカップリング剤（味の素（株）製のKRTTS：イソプロピルトリイソステアロイルチタネート）の3重量%トルエン溶液500gを滴下し、6時間処理した。 80°C 浴下でアスピレーターで乾燥した後、さらに 60°C で真空乾燥し、分級して平均粒径 $3.7\mu\text{m}$ の粉末を得た。

【0024】(2) 熱可塑性樹脂

PPS

出光石油化学（株）製：極限粘度 0.2dl/g （ 206°C ，α-クロロナフタレン中）

PEEK

三井東圧（株）製：極限粘度 0.85dl/g （ 60°C ，p-クロロフェノール中）

ポリアリーールシアノエーテル

出光興産（株）製：

PEN-R；極限粘度 0.7dl/g （ 60°C ，p-クロロフェノール中）

PEN-H；極限粘度 0.4dl/g （ 60°C ，p-クロ

ロフェノール中）

PEN-N；極限粘度 0.3dl/g （ 60°C ，p-クロロフェノール中）

PEN-B；極限粘度 0.5dl/g （ 60°C ，p-クロロフェノール中）

【0025】(3) 固体潤滑剤

テフロン粉末

ダイキン工業（株）製：ルブロンL-2

二硫化モリブデン粉末

10 大東潤滑（株）製：リキモリ LM12

パーフルオロアルキルカルボン酸粉末

ダイキン工業（株）製：ユニダイン DS101

有機カルボン酸エステル

（株）小桜商会製：モールドウィズ INT-33PA

窒化硼素粉末

電気化学工業（株）製：ボロンナイトライド

二硫化タングステン（ WS_2 ）

共立窯業原料製

【0026】(4) 攪拌分散機

20 IKA社製：ウルトラディスペーサー（回転数：毎分10000回転）

特殊機化工業（株）製：コンビミックス3M-5（回転数：ホモディスペー；毎分5000回転，ホモミキサー；毎分10000回転，アンカーミキサー；毎分1500回転）

(5) 分散機

深江工業（株）製：ハイスピードミキサーLFG-GS-1型（回転数：アジテーター；毎分2000回転，アンカーミキサー；毎分500回転）

30 (6) 混練機

（株）ダルトン製万能攪拌機：5DMV-r型（回転数：毎分48回転）

(7) 触砕機

（株）不二パウダル製：サンプルミル

【0027】a. 被覆工程

参考例1（熱可塑性樹脂被覆フェライト磁石粉末（PEN-R被覆））

フェライト粉末2462.5gとN-メチルピロリドン（NMP）3リットルの入ったスピードミキサーに、 200°C で37.5gの熱可塑性樹脂（PEN-R）を溶解させた2リットルのNMP溶液を注ぎ込んだ後、攪拌、分散させながら容器ジャケットに冷却水を流し、室温まで冷却した。その後、分散液を濾過しフェライト被覆磁石粉末を分離し、メタノール5リットルを用いて3回洗浄して濾過後、 120°C にて8時間熱風乾燥した。

参考例2（熱可塑性樹脂被覆フェライト磁石粉末（PEN-H被覆））

参考例1において、熱可塑性樹脂をPEN-RからPEN-H（極限粘度 0.4dl/g ），出光興産（株）製に代えた他は、参考例1と同様の操作で熱可塑性樹

脂被覆を行った。

参考例3 (熱可塑性樹脂被覆フェライト磁石粉末 (PEN-B被覆))

参考例1において、熱可塑性樹脂をPEN-RからPEN-B (極限粘度0.5 (dl/g), 出光興産 (株) 製) に代えた他は、参考例1と同様の操作で熱可塑性樹脂被覆を行った。

参考例4 (熱可塑性樹脂被覆フェライト磁石粉末 (PEN-N被覆))

参考例1において、熱可塑性樹脂をPEN-RからPEN-N (極限粘度0.5 (dl/g), 出光興産 (株) 製) に代えた他は、参考例1と同様の操作で熱可塑性樹脂被覆を行った。

参考例5 (熱可塑性樹脂被覆フェライト磁石粉末 (PPS被覆))

15gのPPSを α -クロロナフタレン200ミリリットル、250℃で加熱溶解させた。これを240℃に予熱したフェライト粉985gの入った高速分解攪拌中のハイスピードミキサーに5分間で滴下し、ジャケット内に水を流して室温まで冷却した。その後、アジテーターを1500rpmとして分散混合攪拌と同時に130℃で減圧乾燥を行いながら、ボールで解砕しながら溶媒除去を行い樹脂被覆磁石粉末を調製した。ボールは、アルミナ製で直径10mmのものを100個用いた。

参考例6 (熱可塑性樹脂被覆フェライト磁石粉末 (PEEK被覆))

参考例5において、熱可塑性樹脂をPEEKに代えた他は、参考例5と同様の操作でアルゴン気流下の不活性雰囲気中で樹脂被覆を行った。

参考例7 (熱可塑性樹脂被覆サマリウムコバルト磁石粉末)

100℃に予熱したサマリウムコバルト粉末990gの入った5リットルのジャケット付ガラス容器に、190℃で10gのPEN-Rを溶解させた2リットルのNMP溶液を注ぎ込んだ後、ウルトラディスパーサーで強攪拌、分散させながら容器ジャケットに冷却水を流して室温まで冷却した。その後、イソプロピルアルコール600ミリリットルを30分間で滴下ロートより滴下しながら攪拌、分散を行った。得られたスラリーを1リットルのイソプロピルアルコールを用いたデカンテーションにより溶媒置換を3回繰り返した後、瞬間真空装置にかけて溶媒除去を行った。このとき、真空乾燥装置の運転条件は、加熱管ジャケット温度130℃、粉体捕集室内の温度120℃、真空度30torr、送液ポンプ250cc/分、吐出圧力0.1~2.7kg/cm²であった。

参考例8 (熱可塑性樹脂被覆ネオジム磁石粉末)

200℃に予熱した万能攪拌機に、ネオジム磁石粉末1485g, PEN-R (15g) およびNMP1リットルを投入し、1時間攪拌、混合させた。その後、1時間かけて100℃まで冷却し、再度200℃に加熱しながら

ら真空ポンプにて減圧しNMPを留去した。

参考例9 (熱可塑性樹脂被覆ネオジム磁石粉末)

200℃に予熱した万能攪拌機に、ネオジム磁石粉末1485g, PEN-R (15g), テフロン粉末3.01g, 二硫化モリブデン3.01gおよびNMP1リットルを投入し、1時間攪拌、混合させた。その後、1時間かけて100℃まで冷却し、再度200℃に加熱しながら真空ポンプにて減圧しNMPを留去した。

【0028】b. 解砕工程

上記参考例1~6で得たフェライト磁石の熱可塑性樹脂被覆粉末は、それぞれ解砕機 (不二パウダル製, サンプルミル) を用いて10000rpmで2回解砕を行った。

c. 圧縮成型工程

上記解砕後の参考例1~6のフェライト磁石の熱可塑性樹脂被覆粉末を、10kOeの磁場下、室温で3ton/cm²の印加圧で圧縮成型を行った。一方、上記解砕後の参考例7のサマリウムコバルト磁石の熱可塑性樹脂被覆粉末は、15kOeの磁場下、室温で6ton/cm²の印加圧で圧縮成型を行った。また、上記参考例8, 9のネオジム系磁石の熱可塑性樹脂被覆粉末は、無磁場、室温で6ton/cm²の印加圧で圧縮成型を行った。

【0029】d. 熱処理

上記圧縮成型後の各磁石につき、350℃で10分間熱処理を行った。但し、希土類系のものは、アルゴン気流下の不活性雰囲気中で行った。

e. 着磁

フェライト磁石は15kOe、希土類系の磁石は30kOeの磁界を印加した。

【0030】実施例1

参考例1で製造し、解砕した熱可塑性樹脂被覆フェライト磁石粉末499gに、潤滑剤としてテフロン粉末1.0gを加え混合した。その後、圧縮成型および熱処理を行い磁石を得た。得られた磁石の物性評価を第1表に示す。

実施例2

熱可塑性樹脂被覆フェライト磁石粉末を498gおよびテフロン粉末を2.0gとした以外は、実施例1と同様にして磁石を得た。得られた磁石の物性評価を第1表に示す。

実施例3

熱可塑性樹脂被覆フェライト磁石粉末を497gおよびテフロン粉末を3.0gとした以外は、実施例1と同様にして磁石を得た。得られた磁石の物性評価を第1表に示す。

【0031】実施例4

潤滑剤として二硫化モリブデン1.0gを用いた以外は、実施例1と同様にして磁石を得た。得られた磁石の物性評価を第1表に示す。

実施例5

参考例2で製造し、解砕した熱可塑性樹脂被覆フェライト磁石粉末499gに、潤滑剤としてテフロン粉末1.0gを加え混合した。その後、圧縮成型および熱処理を行い磁石を得た。得られた磁石の物性評価を第1表に示す。

実施例6

参考例3で製造し、解砕した熱可塑性樹脂被覆フェライト磁石粉末499gに、潤滑剤としてテフロン粉末1.0gを加え混合した。その後、圧縮成型および熱処理を行い磁石を得た。得られた磁石の物性評価を第1表に示す。

【0032】実施例7

参考例4で製造し、解砕した熱可塑性樹脂被覆フェライト磁石粉末499gに、潤滑剤としてテフロン粉末1.0gを加え混合した。その後、圧縮成型および熱処理を行い磁石を得た。得られた磁石の物性評価を第1表に示す。

実施例8

参考例5で製造し、解砕した熱可塑性樹脂被覆フェライト磁石粉末499gに、潤滑剤としてテフロン粉末1.0gを加え混合した。その後、圧縮成型および熱処理を行い磁石を得た。得られた磁石の物性評価を第1表に示す。

実施例9

参考例6で製造し、解砕した熱可塑性樹脂被覆フェライト磁石粉末499gに、潤滑剤としてテフロン粉末1.0gを加え混合した。その後、圧縮成型および熱処理を行い磁石を得た。得られた磁石の物性評価を第1表に示す。

【0033】実施例10

参考例7で製造した熱可塑性樹脂被覆サマリウムコバルト磁石粉末499gに、潤滑剤としてテフロン粉末1.0gを加え混合した。その後、圧縮成型および熱処理を行い磁石を得た。得られた磁石の物性評価を第1表に示す。

実施例11

潤滑剤として二硫化モリブデン1.0gを用いた以外は、実施例10と同様にして磁石を得た。得られた磁石の物性評価を第1表に示す。

実施例12

参考例8で製造した熱可塑性樹脂被覆ネオジム磁石粉末499gに、潤滑剤としてテフロン粉末1.0gを加え混合した。その後、圧縮成型および熱処理を行い磁石を得た。得られた磁石の物性評価を第1表に示す。

【0034】実施例13

潤滑剤として二硫化モリブデン1.0gを用いた以外は、実施例12と同様にして磁石を得た。得られた磁石の物性評価を第1表に示す。

実施例14

潤滑剤として二硫化モリブデン1.0gおよびテフロン粉末1.0gを用いた以外は、実施例12と同様にして磁石を得た。得られた磁石の物性評価を第1表に示す。

実施例15

潤滑剤としてユニダイン1.0gを用いた以外は、実施例12と同様にして磁石を得た。得られた磁石の物性評価を第1表に示す。

【0035】実施例16

潤滑剤としてモールドウィズ1.0gを用いた以外は、実施例12と同様にして磁石を得た。得られた磁石の物性評価を第1表に示す。

実施例17

参考例9で製造した熱可塑性樹脂被覆ネオジム磁石粉末498gに、潤滑剤として二硫化モリブデン1.0gおよびテフロン粉末1.0gを加え混合した。その後、圧縮成型および熱処理を行い磁石を得た。得られた磁石の物性評価を第1表に示す。

実施例18

潤滑剤として窒化硼素1.0gを用いた以外は、実施例12と同様にして磁石を得た。得られた磁石の物性評価を第1表に示す。

実施例19

潤滑剤として二硫化タングステン1.0gを用いた以外は、実施例12と同様にして磁石を得た。得られた磁石の物性評価を第1表に示す。

【0036】比較例1~6

参考例1~6で製造し、解砕した熱可塑性樹脂被覆フェライト磁石粉末を圧縮成型した後、熱処理を行い磁石を得た。得られた磁石の物性評価を第1表に示す。

比較例7

参考例7で製造した熱可塑性樹脂被覆サマリウムコバルト磁石粉末を圧縮成型した後、熱処理を行い磁石を得た。得られた磁石の物性評価を第1表に示す。

比較例8

参考例8で製造した熱可塑性樹脂被覆ネオジム磁石粉末を圧縮成型した後、熱処理を行い磁石を得た。得られた磁石の下記の物性評価を第1表に示す。

磁気特性評価(残留時速密度, 固有保磁力, 最大エネルギー積)

40 東英工業(株)製:D.C.RECORDING FLUXMETER Ciffi型
磁束計MODEL TRF 5AH1型を用いて測定した。

型かじり評価

(株)ハイテック製の30トン磁場プレスを用い、フェライト系3トン/cm², 希土類系6トン/cm²にて径20mmの試験片を成型し、その試験片の側面を測定した。

被覆樹脂量の測定

ポリシアノアリアルエーテルおよびPEEKの場合

樹脂被覆後の磁石粉末10g(測定値W₁)をフラスコ

50 にとり、p-クロロフェノール溶媒150ミリリットル

を用いて、60℃で加熱溶媒抽出を行った。抽出ろ液に水を加えても白濁しなくなるまで上記加熱溶媒抽出を繰り返した後、磁石粉末に残留する溶媒をメタノールで除去し、50℃で真空乾燥した。得られた被覆樹脂を除去した磁石粉末の重量 (W_2) を測定し、重量減少分を被覆樹脂量とした。被覆樹脂量 (重量%) は、次式にて算出した。

*

第1表

| | 磁石粉末 | 熱可塑性樹脂 | | 潤滑剤 | |
|-------|-------|--------|----------------|--------------------------------|--------------|
| | | 種 類 | 被覆樹脂量 (重量%) | 種 類 | 添加量 (重量%) |
| 実施例 1 | フェライト | PEN-R | 1.47 | テフロン | 0.2 |
| 実施例 2 | フェライト | PEN-R | 1.47 | テフロン | 0.4 |
| 実施例 3 | フェライト | PEN-R | 1.47 | テフロン | 0.6 |
| 実施例 4 | フェライト | PEN-R | 1.47 | MoS ₂ ^{*1} | 0.2 |
| 実施例 5 | フェライト | PEN-H | 1.49 | テフロン | 0.2 |
| 実施例 6 | フェライト | PEN-B | 1.48 | テフロン | 0.2 |
| 実施例 7 | フェライト | PEN-N | 1.48 | テフロン | 0.2 |
| 実施例 8 | フェライト | PPS | 1.46 | テフロン | 0.2 |
| 実施例 9 | フェライト | PEEK | 1.48 | テフロン | 0.2 |

*1 二硫化モリブデン

【0038】

【表2】

* PPSの場合

α -クロロナフタレンを溶媒と用い206℃に加熱し、上記と同様に行った。

$$\text{被覆樹脂量 (重量\%)} = (W_1 - W_2) \times 100 / W_1$$

【0037】

【表1】

第1表(続き)

【0039】

【表3】

| | 成形体の特性 | |
|------|--------|-----------------|
| | 型かじり*2 | 成型体密度 (g/cc) |
| 実施例1 | ○ | 3.52 |
| 実施例2 | ○ | 3.54 |
| 実施例3 | ○ | 3.55 |
| 実施例4 | ○ | 3.52 |
| 実施例5 | ○ | 3.52 |
| 実施例6 | ○ | 3.52 |
| 実施例7 | ○ | 3.53 |
| 実施例8 | ○ | 3.52 |
| 実施例9 | ○ | 3.53 |

*2 ○: かじりなし

△: 成型体側面に筋が入る

×: 型かじり

第1表(続き)

| | 磁気特性 | | |
|------|-------------------|------------------|--|
| | 残留磁束密度 Br (KG) | 保持力 bHc (KOe) | 最大エネルギー積 (BH) _{max} (MGOe) |
| 実施例1 | 2.60 | 2.31 | 1.57 |
| 実施例2 | 2.61 | 2.32 | 1.58 |
| 実施例3 | 2.61 | 2.32 | 1.57 |
| 実施例4 | 2.61 | 2.32 | 1.57 |
| 実施例5 | 2.58 | 2.31 | 1.57 |
| 実施例6 | 2.59 | 2.33 | 1.55 |
| 実施例7 | 2.60 | 2.30 | 1.56 |
| 実施例8 | 2.60 | 2.29 | 1.55 |
| 実施例9 | 2.58 | 2.29 | 1.55 |

【0040】

【表4】

第1表(続き)

| | 磁石粉末 | 熱可塑性樹脂 | | 潤滑剤 | |
|-------|-----------|--------|--------------|---------------------------------|--------------|
| | | 種 類 | 添加量 (重量%) | 種 類 | 添加量 (重量%) |
| 実施例10 | サマリウムコバルト | PBN-R | 0.98 | テフロン | 0.2 |
| 実施例11 | サマリウムコバルト | PBN-R | 0.98 | MoS ₂ * ¹ | 0.2 |
| 実施例12 | ネオジム | PBN-R | 0.96 | テフロン | 0.1 |
| 実施例13 | ネオジム | PBN-R | 0.96 | MoS ₂ * ¹ | 0.1 |
| 実施例14 | ネオジム | PBN-R | 0.96 | T/M* ³ | 0.1/0.1 |
| 実施例15 | ネオジム | PBN-R | 0.96 | ユニダイン | 0.1 |
| 実施例16 | ネオジム | PBN-R | 0.96 | ML* ⁴ | 0.1 |
| 実施例17 | ネオジム | PBN-R | 0.98 | T/M* ³ | 0.2/0.2 |
| 実施例18 | ネオジム | PBN-R | 0.98 | BN* ⁵ | 0.1 |
| 実施例19 | ネオジム | PBN-R | 0.98 | WS ₂ * ⁶ | 0.1 |

* 1, 2 前記と同じ

* 3 テフロン/二硫化モリブデン

* 4 モールドウィズ

* 5 窒化硼素

* 6 二硫化タングステン

【0041】

【表5】

第1表(続き)

【0042】
【表6】

| | 成形体の特性 | |
|-------|--------|-----------------|
| | 型かじり*2 | 成型体密度 (g/cc) |
| 実施例10 | ○ | 5.94 |
| 実施例11 | ○ | 5.90 |
| 実施例12 | ○ | 5.76 |
| 実施例13 | ○ | 5.75 |
| 実施例14 | ○ | 5.74 |
| 実施例15 | ○ | 5.75 |
| 実施例16 | ○ | 5.76 |
| 実施例17 | ○ | 5.73 |
| 実施例18 | ○ | 5.75 |
| 実施例19 | ○ | 5.74 |

*2 前記と同じ

第1表(続き)

| | 磁 気 特 性 | | |
|-------|-------------------|------------------|--|
| | 残留磁束密度 Br (KG) | 保持力 bHc (KDe) | 最大エネルギー積 (BH) _{max} (MGDe) |
| 実施例10 | 7.90 | 11.30 | 14.50 |
| 実施例11 | 7.70 | 10.20 | 13.40 |
| 実施例12 | 7.50 | 8.80 | 10.50 |
| 実施例13 | 7.52 | 8.80 | 10.60 |
| 実施例14 | 7.50 | 8.80 | 10.50 |
| 実施例15 | 7.49 | 8.70 | 10.40 |
| 実施例16 | 7.56 | 8.80 | 10.40 |
| 実施例17 | 7.49 | 8.79 | 10.48 |
| 実施例18 | 7.50 | 8.80 | 10.50 |
| 実施例19 | 7.54 | 8.78 | 10.49 |

【0043】

【表7】

第1表(続き)

| | 磁石粉末 | 熱可塑性樹脂 | | 潤滑剤 | |
|------|-----------|--------|--------------|-----|--------------|
| | | 種 類 | 添加量 (重量%) | 種 類 | 添加量 (重量%) |
| 比較例1 | フェライト | PEN-R | 1.5 | なし | — |
| 比較例2 | フェライト | PEN-H | 1.5 | なし | — |
| 比較例3 | フェライト | PEN-B | 1.5 | なし | — |
| 比較例4 | フェライト | PEN-N | 1.5 | なし | — |
| 比較例5 | フェライト | PPS | 1.5 | なし | — |
| 比較例6 | フェライト | PEEK | 1.5 | なし | — |
| 比較例7 | サマリウムコバルト | PEN-R | 1.0 | なし | — |
| 比較例8 | ネオジム | PEN-R | 1.0 | なし | — |

【0044】

【表8】

第1表(続き)

| | 成形体の特性 | |
|------|--------|-----------------|
| | 型かじり*2 | 成型体密度 (g/cc) |
| 比較例1 | △ | 3.51 |
| 比較例2 | △ | 3.50 |
| 比較例3 | △ | 3.51 |
| 比較例4 | △ | 3.50 |
| 比較例5 | △ | 3.50 |
| 比較例6 | △ | 3.51 |
| 比較例7 | × | 5.90 |
| 比較例8 | × | 5.69 |

*2 前記と同じ

第1表(続き)

| | 磁気特性 | | |
|------|-------------------|------------------|--|
| | 残留磁束密度 Br (KG) | 保持力 bHc (KOe) | 最大エネルギー積 (BH) _{max} (MGOe) |
| 比較例1 | 2.59 | 2.27 | 1.55 |
| 比較例2 | 2.57 | 2.29 | 1.54 |
| 比較例3 | 2.56 | 2.30 | 1.53 |
| 比較例4 | 2.57 | 2.28 | 1.54 |
| 比較例5 | 2.57 | 2.27 | 1.52 |
| 比較例6 | 2.56 | 2.26 | 1.53 |
| 比較例7 | 7.80 | 10.80 | 14.00 |
| 比較例8 | 7.20 | 8.70 | 10.10 |

【0046】

【発明の効果】本発明の樹脂被覆磁石粉末組成物を用いれば、耐熱性、耐薬品性、耐吸水性、経時寸法安定性、成型寸法安定性、線膨張係数などに優れるとともに、成型にあたって型かじりのない磁石を容易に製造すること*

【0045】
【表9】

*ができる。従って、本発明の樹脂被覆磁石粉末組成物は、高温環境下や耐薬品性の要求される場所で用いられるモーター等をはじめとする各種の電気、電子機器などに幅広く、かつ有効に利用することができる。

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ BLACK BORDERS
- ☐ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- ☒ FADED TEXT OR DRAWING
- ☐ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
- ☐ SKEWED/SLANTED IMAGES
- ☐ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
- ☐ GRAY SCALE DOCUMENTS
- ☐ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
- ☐ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
- ☐ OTHER: _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.